

I. PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Pengelolaan limbah industri merupakan isu yang menjadi perhatian internasional dan salah satu tantangan paling berat yang dihadapi negara-negara modern, terutama jika menyangkut limbah tahan lama yang tidak dapat terurai secara hayati seperti material berbahan dasar tanah liat serta limbah konstruksi dan biomassa (Aisheh, 2023). Indonesia termasuk salah satu negara yang kaya akan sumber daya energi dan biomassa dalam bentuk batubara dan kelapa sawit. Cadangan batubara di Indonesia sebesar $\pm 31,71$ milyar ton dengan rata-rata produksi batubara 775,2 juta ton (ESDM, 2024). Semakin meningkatnya penggunaan batubara dan kelapa sawit di Indonesia, maka semakin banyak produk sampingan yang dihasilkan, dimana statistik mengungkapkan bahwa 11-13 ton *Cool Fly Ash* (CFA) dan 2-3 ton *Cool Bottom Ash* (CBA) yang dihasilkan dari batubara setiap tahunnya. Sedangkan pembakaran cangkang dan fiber kelapa sawit menghasilkan produk samping yaitu: *fly ash* sebesar 1-2 juta ton dan *bottom ash* 4-5 juta ton yang dihasilkan setiap tahunnya (Ahmad *et al.*, 2023). *Fly ash* batubara memiliki kandungan senyawa kimia SiO_2 58,75%; Al_2O_3 25,82%; Fe_2O_3 5,30%; CaO 4,66%; alkali 1,36%; MgO 3,30% dan senyawa lain 0,81%. Sedangkan *fly ash* limbah pembakaran industri kelapa sawit mengandung SiO_2 50,57%; Al_2O_3 1,03%; MgO 4,73%; P_2O_5 6,53%; K_2O 8,45%; CaO 15,92%; Fe_2O_3 2,56% dan senyawa lain 10,21% (Kongnoo *et al.*, 2017). Tingginya kandungan alumina dan silika pada *fly ash* batubara dan kelapa sawit maka dapat dijadikan zeolit yang bermanfaat bagi industri.

Zeolit adalah mineral aluminosilikat yang memiliki struktur yang berpori dan banyak digunakan dalam berbagai aplikasi industri, karena sifat struktural dan kimianya yang unik, yang merupakan dasar aplikasi dalam pemisahan gas, pertukaran ion dan katalisis. Pembentukan zeolit harus memenuhi beberapa syarat yaitu adanya aluminium dan silikon dalam bentuk oksida, ion logam alkali, air, suhu tinggi dan tekanan tinggi (Poh dan Lun, 2023). Zeolit sintetik, dapat diperoleh dengan kemurnian kristal yang sangat tinggi dan dapat disintesis dalam jumlah yang sangat besar. Sifat-sifatnya juga lebih mudah dipelajari dan diubah dibandingkan dengan zeolit alam. Penggunaan zeolit sebagai katalis masih terbatas karena memiliki pori-pori yang sempit, yang menyebabkan komponen reaktan yang memiliki ukuran molekul besar akan mengalami kesulitan dalam proses transfer yang besar, sehingga perlu dilakukannya pengubahan pori menjadi zeolit berpori hierarki (Koehle *et al.*, 2018). Zeolit berpori hierarki didefinisikan sebagai zeolit dengan setidaknya satu porositas tambahan, yaitu

porositas mesopori atau makropori. Penambahan porositas yang lebih besar pada kerangka zeolit dapat meningkatkan perpindahan massa dan meningkatkan aktivitas katalitik (Bu *et al.*, 2018). Laju difusi yang lebih cepat dapat mencegah pembentukan kokas; memperlambat penonaktifan katalis (Milina *et al.*, 2015). Selain itu, juga dapat memberikan jalan bagi molekul reaktan yang lebih besar untuk mencapai situs aktif di mikropori.

Zeolit katalis umumnya mempunyai rasio Si/Al tinggi (>10) sehingga dapat digunakan sebagai katalis seperti konversi hidrokarbon, perubahan metanol menjadi gasolin, dll (Vinodh *et al.*, 2019). *Catalytic cracking* banyak digunakan untuk memproduksi biofuel dari minyak nabati. Kerangka aluminosilikat zeolit menyediakan kapasitas pertukaran kation yang tinggi, adsorpsi tinggi, dan memiliki sifat penyerapan udara (hidrasi) dan pelepasan udara (dehidrasi). Zeolit sintetis yang sering digunakan dalam reaksi perengkahan katalitik di kilang minyak yang menghasilkan selektivitas bensin yang tinggi adalah zeolit Y, ZSM-5, ZSM-18, ZSM-11, ZSM-12 dan lain-lainnya (Vogt & Weckhuysen, 2015). Zeolit ZSM-5 paling banyak digunakan karena keunggulan keasamannya, struktur pori khusus, dan stabilitas termal dan hidrotermal yang tinggi.

Ada beberapa parameter yang dapat mempengaruhi sifat-sifat katalis zeolit. Parameter ini adalah *template*, dan kondisi kristalisasi (Widayat & Annisa, 2017). *Template* mengarah struktur berfungsi untuk mengarahkan ukuran pori dari zeolit yang akan disintesis. *Template* organik yang biasa digunakan ialah *Tetrapropylammonium hydroxide* (TPAOH) dan *Tetrapropylammonium bromide* (TPABr) sebagai pengarah struktur mikropori (Fitria *et al.*, 2021) serta *Cetyltrimethylammonium bromide* (CTABr) sebagai pengarah struktur mesopori (Hamid *et al.*, 2020). Selain sebagai pengarah struktur mesopori, penggunaan CTABr juga dapat meningkatkan intensitas ketajaman dari puncak difraktogram 2θ pada $7,92^\circ$; $8,78^\circ$; $23,14^\circ$ dan $23,98^\circ$ yang mengindikasikan terbentuknya kristal ZSM-5 (Widayat & Annisa, 2017). Kelemahan utama bahan mikropori adalah keterbatasan difusi. Terbatasnya akses mikropori kecil dapat membatasi perpindahan massa reaktan, sehingga dapat menurunkan hasil dari kinetika reaksi (Jun *et al.*, 2017).

Kristalisasi dipengaruhi oleh waktu *aging* (pemeraman) dan waktu hidrotermal. Semakin lama waktu *aging* dan hidrotermal, maka semakin tinggi kristalinitas katalis yang terbentuk. Hal ini dikarenakan terjadi pembentukan prekursor zeolit primer, yang menyebabkan prekursor zeolit primer yang terbentuk akan semakin banyak, partikel meningkat lebih besar. Pada waktu kristalisasi 6 jam, katalis ZSM-5 memiliki kristalinitas 33,35% sedangkan pada 8 jam memiliki kristalinitas 34,33%. Namun demikian, derajat kristalinitas mereka

masih rendah, akibatnya setelah proses kristalisasi dilakukan proses kalsinasi. Penelitian yang dilakukan oleh (Hartanto *et al.*, 2011) dengan melakukan *aging* pada suhu 60°C menggunakan variasi waktu *aging* 6 jam, 12 jam, 24 jam dan tanpa *aging*, dengan menggunakan sumber silika dari TEOS, sumber Al dari natrium aluminat dan TPAOH sebagai *template*. Keristhanilitas ZSM-5 yang dihasilkan semakin meningkat dengan meningkatnya waktu *aging*. ZSM-5 yang dihasilkan memiliki ukuran pori sekitar 3,8 nm.

Pada beberapa penelitian telah berhasil dilakukan sintesis ZSM-5 dengan menggunakan *fly ash* sebagai bahan tambahan sumber silika dan alumina dengan berbagai kondisi. Ada beberapa metode yang digunakan untuk sintesis zeolit seperti metode sol-gel (Chen *et al.*, 2021), co-pretisipasi (Kumaran *et al.*, 2019), microwave-assistant (Ren *et al.*, 2020) dan hidrotermal (Marlinda *et al.*, 2023). Hidrotermal merupakan teknik sintesis kristal berdasarkan kelarutan mineral dalam air dengan kondisi suhu di atas temperatur ruang, tekanan tinggi, dan sistem tertutup. Air berperan sebagai pelarut, berpartisipasi dalam reaksi, memindahkan tekanan dan dapat mengubah sifat fisika dan kimia dari reaktan dan produk. Sintesis zeolit dengan metode hidrotermal dapat meningkatkan kecepatan nukleasi dan kristalisasi karena beberapa faktor penentu jalannya reaksi yaitu kemampuan solvasi efektif air, kelarutan reaktan dan reaktivitas bahan meningkat saat hidrotermal (Hartati dan Prasetyoko, 2023). Berdasarkan penelitian yang dilakukan oleh Schmitt dan Kennedy (1994) ZSM-18 berhasil disintesis dengan metode hidrotermal yang memiliki 2 theta spesifik 7,69; 13,59; 21,29 dan 23,39.

Berdasarkan uraian di atas, penelitian ini dilakukan untuk memanfaatkan limbah *fly ash* batubara dan kelapa sawit dengan cara mengekstrak silika dan alumina yang akan digunakan sebagai bahan utama pembuatan zeolit dengan target ukuran mesopori menggunakan metode hidrotermal dengan *template* organik CTABr sebagai pengarah struktur mesopori. Maka dari itu penulis menyusun usulan penelitian ini dengan judul **“Sintesis dan Karakterisasi Zeolit Mesopori Hierarki dengan Memanfaatkan Fly Ash Batubara dan Kelapa Sawit sebagai Prekursor”**

1.2 Identifikasi dan Rumusan Masalah

Penggunaan batubara dan kelapa sawit yang semakin meningkat berdampak pada jumlah limbah *fly ash* yang dihasilkan dan dapat mengancam kesehatan masyarakat serta mencemari lingkungan. Limbah *fly ash* batubara dan kelapa sawit memiliki kandungan silika dan alumina yang cukup tinggi. Sehingga *fly ash* berpotensi sebagai bahan alternatif dalam sintesis zeolit. Selain itu juga, terbentuknya kristal zeolit pada proses sintesis menggunakan metode

hidrotermal sangat dipengaruhi oleh waktu *aging* dan waktu hidrotermal. Rumusan masalah dalam penelitian ini sebagai berikut:

1. Bagaimana mensintesis zeolit hierarki dari *fly ash* batubara sebagai sumber alumina dan *fly ash* kelapa sawit sebagai sumber silika.
2. Bagaimana pengaruh waktu hidrotermal terhadap karakteristik zeolit mesopori hierarki yang disintesis dengan menggunakan *fly ash* batubara sebagai sumber alumina dan *fly ash* kelapa sawit sebagai sumber silika.
3. Bagaimana pengaruh waktu *aging* terhadap karakteristik zeolit mesopori hierarki yang disintesis dengan menggunakan *fly ash* batubara sebagai sumber alumina dan *fly ash* kelapa sawit sebagai sumber silika.
4. Bagaimana sifat fisikokimia zeolit yang disintesis berdasarkan metode BET dan BJH.

1.3 Tujuan Penelitian

Berdasarkan rumusan masalah tersebut, maka tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Mensintesis zeolit hierarki dari *fly ash* batubara sebagai sumber alumina dan *fly ash* kelapa sawit sebagai sumber silika.
2. Menganalisis hasil karakterisasi zeolit mesopori hierarki dari *fly ash* batubara sebagai sumber alumina dan *fly ash* kelapa sawit sebagai sumber silika terhadap pengaruh waktu hidrotermal.
3. Menganalisis hasil karakterisasi zeolit mesopori hierarki dari *fly ash* batubara sebagai sumber alumina dan *fly ash* kelapa sawit sebagai sumber silika terhadap pengaruh waktu *aging*.
4. Menganalisis sifat fisikokimia zeolit yang disintesis menggunakan metode BET dan BJH.

1.4 Manfaat

Hasil penelitian ini diharapkan dapat memberikan manfaat seperti:

1. Berkontribusi terhadap pengembangan pengetahuan dalam bidang kimia anorganik, fisik dan lingkungan.
2. Memberikan informasi mengenai pemanfaatan limbah *fly ash* batubara dan kelapa sawit sebagai bahan alternatif dalam sintesis zeolit.
3. Menjadi sumber referensi atau perbandingan untuk penelitian lebih lanjut.